

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 58-182802  
 (43)Date of publication of application : 25.10.1983

(51)Int.Cl.

H01F 1/08  
 C22C 19/07

(21)Application number : 57-065404  
 (22)Date of filing : 21.04.1982

(71)Applicant : PIONEER ELECTRONIC CORP  
 (72)Inventor : TSUKAGOSHI NOBUHIRO  
 ITO HIROSHI  
 TAKASU YUTAKA  
 NOMURA HAJIME

## (54) PREPARATION OF PERMANENT MAGNET

## (57)Abstract:

PURPOSE: To eliminate the variation of magnetic property and reduce processing time of solution heat treatment before thin plate is pulverized by such arrangement wherein a thin plate is made by quickly cooling molten liquid of a chemical compound of rare earth transition metal, or a thin plate is formed by powder sintering method or powder is molded into a thin plate with synthetic resin.

CONSTITUTION: An R2TM17 type magnet of which columnar crystal tissue is stable can be obtained by such a method that a thin plate is made by quickly cooling the molten liquid of ingredient metals of the magnet. A chemical compound of rare earth transition metal family to be represented by a general formula of  $R_nTM_{n'}$  is used. In the formula, R represents the mixture of a misch metal and one or more than 2 kinds of rare earth metals such as Sm, Ce, Pr, etc., and as the misch metal, such a type having a composition, e.g., 55% Ce, 25% La, 13% Nd, 5% Pr and 0.3% Sm is used. In the formula, TM represents one kind or a mixture of more than 2 kinds of transition metal compounds such as Co, Fe, Ni, Zr, Nb, Ta, Cu, etc., and (n) and (n') represent atomic ratio and there are two cases, one is that  $n=1$  and  $n'=5$ , in other words atomic ratio is 1:5, and the other is that  $n=2$  and  $n'=17$ , in other words atomic ratio is 2:17.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]  
 [Date of sending the examiner's decision of rejection]  
 [Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]  
 [Date of final disposal for application]  
 [Patent number]  
 [Date of registration]  
 [Number of appeal against examiner's decision of rejection]  
 [Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]  
 [Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

BEST AVAILABLE COPY

⑬ 日本国特許庁 (JP)

⑭ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A)

昭58—182802

⑮ Int. Cl.<sup>3</sup>  
H 01 F 1/08  
C 22 C 19/07

識別記号

庁内整理番号  
7354—5E  
7821—4K

⑯ 公開 昭和58年(1983)10月25日

発明の数 2  
審査請求 未請求

(全 5 頁)

⑮ 永久磁石の製造方法

⑰ 特 願 昭57—65404

⑱ 出 願 昭57(1982)4月21日

⑲ 発 明 者 塚越庸弘

所沢市花園4丁目2610番地パイ  
オニア株式会社所沢工場内

⑲ 発 明 者 伊藤寛

所沢市花園4丁目2610番地パイ  
オニア株式会社所沢工場内

⑲ 発 明 者 高洲豊

所沢市花園4丁目2610番地パイ  
オニア株式会社所沢工場内

⑲ 発 明 者 野村一

所沢市花園4丁目2610番地パイ  
オニア株式会社所沢工場内

⑲ 出 願 人 パイオニア株式会社

東京都目黒区目黒1丁目4番1  
号

⑲ 代 理 人 弁理士 滝野秀雄

明 細 書

1. 発明の名称

永久磁石の製造方法

2. 特許請求の範囲

(1) 希土類—遷移金属系化合物の融体を超急冷法により柱状晶組織をもつ薄板にする工程と、前記薄板を粉砕し粉末にする工程と、前記粉末を用いて所定形状に成型する工程とからなる永久磁石の製造方法。

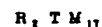
(2) 前記希土類—遷移金属系化合物が一般式



(式中Rはミッシュメタル、Sm、Ce、Prなどの希土類金属の一種または二種以上の混合物を表わし、TMはCo、Fe、Ni、Zr、Nb、Ta、Cuなどの遷移金属化合物の一種または二種以上の混合物を表わしている。またnは1または2を表わし、n'は5または17を表わしている。)で表わされる希土類—遷移金属系化合物であることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の永久磁石の製造方法。

(3) 粉末を用いて所定形状に成型する前記工程において、該粉末と合成樹脂を混練させることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の永久磁石の製造方法。

(4) 一般式



(式中Rはミッシュメタル、Sm、Ce、Prなどの希土類金属の一種または二種以上の混合物を表わし、TMはCo、Fe、Ni、Zr、Nb、Ta、Cuなどの遷移金属化合物の一種または二種以上の混合物を表わしている。)で表わされる希土類—遷移金属系化合物の融体を超急冷法により柱状晶組織をもつ薄板にする工程と、前記薄板を粉砕し粉末にする工程と、平均粒径0.1~1μm以下のAl、Sn、Pbなどの超微粒粉の一種または二種以上の混合物または前記粉末と同一組成を有する超微粒粉と前記工程で得られた粉末とを混合して所定形状に成型する工程とからなる永久磁石の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

本発明は、希土類-遷移金属系の永久磁石の製造方法に関する。

最近、高保磁力と高エネルギー積をもつ希土類-コバルト系化合物磁石として  $R_2TM_{17}$  型磁石 ( $R$ はSmを表わし、 $TM$ はCo、Cu、Fe、Zrを表わす。)が開発されている。

この  $R_2TM_{17}$  型磁石の製造方法として、例えば磁石の各成分金属を高周波炉で溶解し鑄造してインゴットを得、このインゴットを溶体化熱処理し、次いで時効熱処理した後、所定の粒度に粉砕し、得られた粉末にバインダを混合してこの混合物を磁場中で所定形状に成型する方法が知られている。

しかしながら、上記方法によれば次のような問題があった。すなわち、鑄造時のインゴットの結晶組織としてのつぼの内壁面に近い所では柱状晶組織が得られ、るつぼの内壁面から離れた所では等軸晶組織が得られ、るつぼの内壁面に当接する所及びその付近ではチル晶組織が得られるが、これら結晶組織のうち柱状晶組織の部分のものが最も良い磁石性能を示す。しかし、この柱状晶の

3

ミッシュメタルとしては、例えば

Co	55%
La	25%
Nd	13%
Pr	5%
Sm	0.3%

の組成をもつものが使用される。

また、式中  $TM$  は Co、Fe、Ni、Zr、Nb、Ta、Cu などの遷移金属化合物の一種または二種以上の混合物を表わしている。

また、式中  $n$ 、 $n'$  は原子比を表わし、 $n=1$ 、 $n'=5$  の場合、すなわち原子比 1:5 の場合と、 $n=2$ 、 $n'=17$  の場合、すなわち原子比 2:17 の場合とがある。

希土類-遷移金属系化合物として上述の如く種々のものがあるが、これらのうちでも、 $Sm_2(Co_{0.88}Cu_{0.08}Fe_{0.21}Zr_{0.03})$  が好ましい。

また、超急冷法として、双ロール法、ピストンアンドビル法、遠心急冷法、片ロール法等を採用することができる。これらの方法はいずれも融体を

5

成長はるつぼの形状や溶融温度に左右されやすいため、製造される磁石の性能にバラツキがあった。

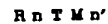
また、大きなインゴットを粉砕して粉末化するために時間を要し、粉末化するまでの間に酸化されて磁石性能が低下する問題もあった。

本発明者等は上記問題を解決すべく鋭意研究の結果、 $R_2TM_{17}$  型磁石の各成分金属の融体を超急冷法により薄板にすると安定して柱状晶組織が得られることを知見し、本発明をなすに至った。

以下本発明を説明する。

本発明にあつては、まず希土類-遷移金属系化合物の融体を超急冷法により柱状晶組織をもつ薄板にする。

前記希土類-遷移金属系化合物として一般式



で表わされる希土類-遷移金属系化合物が使用される。

式中  $R$  はミッシュメタル、Sm、Co、Pr などの希土類金属の一種または二種以上の混合物を表わしている。

4

高速ピストンまたは高速回転するローラに吹き付けることにより瞬時に薄板にする方法で、特に双ロール法により前記希土類-遷移金属系化合物の融体を薄板にすると他の方法よりも安定して柱状晶組織が得られる。

第1図はこの双ロール法により前記希土類-遷移金属系化合物の薄板にする場合を示している。これによれば、バルブ1からノズル2に向けて送られた希土類-遷移金属系化合物の融体3は、ピストン4からノズル2に向けて吹き付けられた高速エアにより該ノズル2から加熱体5を通過して高速回転する一対のロール6、7に吹き付けられる。すると、融体3は瞬時に凝固して一対のロール6、7から薄板3aとして送り出される。

ロール6、7としては、例えばクロム鋼 (JIS規格、SUJ2) からなるロール直径 50 ~ 100 mm φ のものが使用される。また、ロール6、7の回転数は例えば 500 ~ 1000 rpm 程度に設定される。また、ノズル2としては、例えばノズル直径が 0.5 mm φ のものが使用される。ノズ

6

ル2から融体3を噴出する圧力は、例えば0.8 MPa程度に設定される。また、融体3の温度は例えば1250℃に設定される。

ロール6, 7のロール直径、回転数、ノズル2のノズル直径、噴出圧力、融体の温度等のパラメータを上述のように適当に選択することにより、薄板3の厚み、幅、柱状晶組織の平均粒径等を容易に制御することができる。

次いで、上述の工程で得られた薄板を均質化するために温度1050℃～1200℃、時間1～4hrの条件で溶体化熱処理する。この溶体化熱処理により厚味方向に延びる適度な平均粒径をもつ柱状晶組織が得られる。更に、薄板の内部に成長する等軸晶組織とこの柱状晶組織との二相分離状態をはっきりさせるために、温度800℃、時間1hrの条件で焼鈍する。

その後、上述の工程で熱処理された薄板をボールミル、振動ミル等により粉砕し、得られた粉末を粒度計などを用いて各粒度ごとにふるい分ける。

これまでの工程は、特にR<sub>2</sub>TM<sub>17</sub>型の希土類-

7

り磁場をつくりプレス用パンチ15, 16によりグラファイト上パンチ12とグラファイト下パンチ13を互いに接近する方向へ移動させ磁石粉末14を加圧する。このとき、プレス装置を囲むケース17内にアルゴンガスを導入してアルゴン雰囲気をつくる。

上述の工程において、R<sub>2</sub>TM<sub>17</sub>型の希土類-遷移金属系化合物の粉末を使用する場合、この粉末に、平均粒径0.1～1μm以下のAl、Sn、Pbなどの低融点金属の超微粒粉の一種または二種以上を添加してもよい。SnとPbの二種の低融点金属を使用する場合、その混合比率は、例えばSn 80wt%、Pb 40wt%である。そしてこれらの超微粒粉を添加する場合、焼結は750℃～850℃よりも低い温度、例えば300℃程度で行なう。このようにすると、さらに焼結密度が高く、高性能な永久磁石が得られる。

また、R<sub>2</sub>TM<sub>17</sub>型の希土類-遷移金属系化合物の粉末に、ガス中蒸発法やカルボニル法などにより製造された0.1μm以下の平均粒径をもつCo、

8

遷移金属系化合物が非常に酸化されやすいため、すべて非酸化性ガス、例えばAr等の不活性ガスや窒素ガスの雰囲気中で行なわれる。

然る後、上述の工程で得られた粉末を適当な潤滑剤と混合して所定形状のプレス用金型内に装填し、15～20kOeの磁場中で加圧し、次いで温度750～850℃、時間1～2hrの条件で焼結熱処理する。すると、焼結密度が高く性能の良い永久磁石が得られる。なお、平均粒径2～3μmの粉末は、プレス用金型内に装填する前に予めヘキサン等の有機溶剤が含まれる。

第2図は上述の工程で使用されるプレス装置の一例を示している。これによれば、リング状のソレノイド電磁石10内に配置された筒状のグラファイトダイス11とこのグラファイトダイス11の一方の開口部に移動自在に嵌入されたグラファイト上パンチ12と該一方の開口部と反対側に位置する他方の開口部に移動自在に嵌入されたグラファイト下パンチ13とで囲まれた空間内に磁石粉末14を装填して、ソレノイド電磁石10によ

8

Fe、Ni、Cuなどの超微粒粉を添加して焼結するか、あるいは平均粒径2～3μmのR<sub>2</sub>TM<sub>17</sub>型の希土類-遷移金属系化合物の粉末に、これと同一組成の0.1μm以下の超微粒粉を添加して焼結しても同様に焼結密度が高く、高性能な永久磁石が得られる。

これまでの説明では、粉末を焼結させて永久磁石を成型する場合について示したが、粉末を合成樹脂で固めて成型してもよい。合成樹脂を使う場合、まず粉末に合成樹脂を混練してこの混合物を磁場中で成型する。その後、合成樹脂を加熱固化させる。使用する合成樹脂としては、エチレンビニルアセテート、Rigidポリマー、エポキシ樹脂等がある。

このように合成樹脂を使用すると、部品の寸法精度が高く、複雑な形状でも容易に成型できる利点があり、焼結する場合に比して原料歩留まりが高いので低コストとなる。

次に本発明の具体的な実施例を説明する。

実施例1

10

$\text{Sm}_2(\text{O}_2 0.08 \text{ Cu } 0.08 \text{ Fe } 0.21 \text{ Zr } 0.03)_{17}$  の希土類-遷移金属系化合物をアルゴン雰囲気中でアーク溶解して融体を得、この融体を双ロール法により薄板にした。次いで、この薄板を温度  $1200^\circ\text{C}$  で4時間溶体化熱処理した後、振動ミルで粉砕し、平均粒径  $3 \sim 5 \mu\text{m}$  の粉末にした。この後、粉末を  $18 \text{ KOe}$  の均一磁場でプレス圧力  $5 \text{ ton/cm}^2$  で成型し、次いで温度  $1150^\circ\text{C}$  で1時間焼結熱処理を行ない、更に温度  $800^\circ\text{C}$  で4時間時効処理を行なって永久磁石を製造した。この永久磁石の各ロットごとの性能のパラ付を測定したところ、バラ付はほとんどなく、次のような性能値を得た。

最大エネルギー積  $(BH)_{\text{max}} \dots 33 \text{ MG} \cdot \text{Oe}$   
 残留磁束密度  $B_r \dots 13 \text{ kG}$   
 保磁力  $H_c \dots 12 \text{ kOe}$   
 真の保磁力  $BH_c \dots 9 \text{ kOe}$

## 実施例2

実施例1と同じ方法で溶体化熱処理した薄板を更に温度  $800^\circ\text{C}$  で4時間時効処理した後、振動

11

最大エネルギー積  $(BH)_{\text{max}} \dots 14 \text{ MG} \cdot \text{Oe}$   
 残留磁束密度  $B_r \dots 8 \text{ kG}$   
 保磁力  $H_c \dots 12 \text{ kOe}$   
 真の保磁力  $BH_c \dots 6.5 \text{ kOe}$

## 実施例4

実施例1で得られた粉末に、これと同一組成で平均粒径  $0.1 \sim 1 \mu\text{m}$  以下の超微粒粉を添加した後、 $15 \text{ KOe}$  の均一磁場でプレス圧力  $5 \text{ ton/cm}^2$  で成型し、次いで温度  $800^\circ\text{C}$  で4時間時効処理を行ない永久磁石を製造した。この永久磁石の各ロットごとの性能のパラ付を測定したところ、実施例1と同様にバラ付はほとんどなく、次のような性能値を得た。

最大エネルギー積  $(BH)_{\text{max}} \dots 24 \text{ MG} \cdot \text{Oe}$   
 残留磁束密度  $B_r \dots 10 \text{ kG}$   
 保磁力  $H_c \dots 12 \text{ kOe}$   
 真の保磁力  $BH_c \dots 8.5 \text{ kOe}$

以上説明したように本発明によれば、希土類-遷移金属系化合物の融体を鋳型に流し込んでインゴットにするのではなく、超急冷法により薄板に

13

ミルで粉砕し、種々の粒径分布をもつ粉末を得た。次いで、この粉末とエポキシ樹脂を混練して  $15 \text{ KOe}$  の均一磁場でプレス圧力  $5 \text{ ton/cm}^2$  で成型して永久磁石を製造した。この永久磁石の各ロットごとの性能のパラ付を測定したが、実施例1と同様にバラ付はほとんどなく、次のような性能値を得た。

最大エネルギー積  $(BH)_{\text{max}} \dots 20 \text{ MG} \cdot \text{Oe}$   
 残留磁束密度  $B_r \dots 9 \text{ kG}$   
 保磁力  $H_c \dots 12 \text{ kOe}$   
 真の保磁力  $BH_c \dots 7 \text{ kOe}$

## 実施例3

実施例2で得た粉末に平均粒径  $0.1 \mu\text{m}$  以下の  $\text{Sn}$  (60%)、 $\text{Pb}$  (40%) の超微粒粉の混合物を添加して  $18 \text{ KOe}$  の均一磁場でプレス圧力  $5 \text{ ton/cm}^2$  で成型し、次いで温度  $800^\circ\text{C}$  で1時間焼結熱処理を行ない永久磁石を製造した。この永久磁石の各ロットごとの性能のパラ付を測定したところ、実施例1と同様にバラ付はほとんどなく、次のような性能値を得た。

12

するため、最も良い磁石性能を示す柱状晶組織の成長が安定して行なわれる。また、粉末焼結法によって永久磁石を製造する際の重要なパラメータの一つである粒径制御が容易に行なえる。従って、磁石性能のパラ付をなくすることができる。また、薄板を粉砕して粉末にするため、インゴットを粉砕して粉末にする場合よりも短時間で行なわれる。換言すれば、酸化される機会が少なくなり、磁石性能が低下する問題がない。また、薄板を粉末化する前に行なわれる溶体化熱処理において、その処理時間の短縮化が図れる。

## 4. 図面の簡単な説明

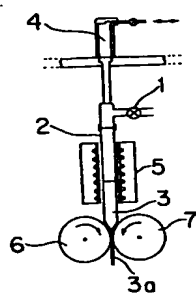
第1図は超急冷法の一つである双ロール法の説明図、第2図は成型工程で使用されるプレス装置の断面図である。

3…融体、3a…薄板、6, 7…ロール、14…粉末、11…グラファイトディスク、12…グラファイト上パンチ、13…グラファイト下パンチ。

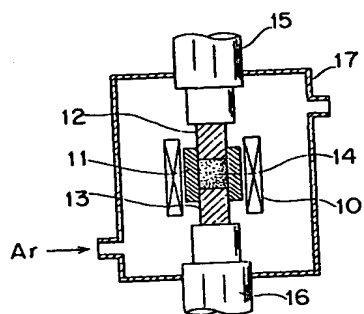
特許出願人 バイオニクス株式会社  
 代理人 池野秀雄

14

第 1 図



第 2 図



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**